ZESZYTY NAUKOWE POLITECHNIKI ŚLĄSKIEJ 1995
Seria: MATEMATYKA-FIZYKA z. 77 GEOCHRONOMETRIA 11 Nr kol. 1293

Romuald AWSIUK, Mieczysław F. PAZDUR

ANTROPOGENICZNE ZMIANY KONCENTRACJI RADIOWĘGLA W ŚRODOWISKU

Streszczenie. Koncentracja izotopu ^{14}C we współczesnym środowisku jest w dużym stopniu zaburzona wskutek wpływu dwóch przeciwnie działających procesów. Systematyczny wzrost ilości spalanych paliw kopalnych powoduje zaniżenie koncentracji izotopu ^{14}C, określane mianem efektu Suessa. W wyniku próbnych wybuchów jądrowych wprowadzono do atmosfery znaczne ilości izotopu ^{14}C. Lokalny wzrost koncentracji izotopu ^{14}C notuje się wokół wielu zakładów energetyki jądrowej.

ANTHROPOGENIC CHANGES OF RADIOCARBON CONCENTRATION IN THE ENVIRONMENT

Summary. Concentration of radiocarbon in the contemporary environment is seriously disturbed because of presence of two opposite processes. Systematical increase of fossil fuel combustion causes decrease of radiocarbon concentration, known as the „Suess effect". Nuclear weapon tests have resulted in production of large amounts of artificial radiocarbon in the atmosphere. Local increase of radiocarbon level has been noted around many nuclear installations.

1. Wstęp

W przyrodzie występują trzy izotopy węgla, dwa stabilne o liczbach masowych 12 i 13, oraz radioaktywny o liczbie masowej 14. Radiowęgiel należy do izotopów kosmogennych, powstających w wyniku oddziaływania promieniowania kosmicznego z atmosferą Ziemi. Podstawową reakcją jadrową, w wyniku której powstaje izotop ^{14}C w warunkach naturalnych, jest reakcja wtórnych neutronów promieniowania kosmicznego z jądrami azotu

$$^{14}N + n \rightarrow {}^{14}C + {}^{1}H$$

Ponadto w naturalnej produkcji radiowęgla mniejsze znaczenie mają reakcje (zob. Florkowski, 1994):

$$
\begin{aligned}
{}^{13}C + n &\rightarrow {}^{14}C + \gamma \\
{}^{15}N + n &\rightarrow {}^{14}C + {}^{2}H \\
{}^{16}O + n &\rightarrow {}^{14}C + {}^{3}He \\
{}^{17}O + n &\rightarrow {}^{14}C + \alpha \\
{}^{11}B + \alpha &\rightarrow {}^{14}C + {}^{1}H \\
{}^{16}O + \mu^- &\rightarrow {}^{14}C + {}^{1}n + {}^{1}H
\end{aligned}
$$

Egzotyczny rozpad Ra z emisją ^{14}C.

Koncentrację ^{14}C w próbkach geochemicznych standardowo wyrażamy dwoma sposobami (zob. Stuiver, Polach, 1977); poprzez procentowy stosunek aktywności określony w literaturze jako „percent Modern" (pM)

$$pM = \frac{A_{SN}}{A_{abs}} \cdot 100\,\%$$

lub, co jest częściej spotykane, przez względną różnicę aktywności próbki i wzorca wyrażoną w promilach

$$\Delta^{14}C = \left(\frac{A_{SN}}{A_{abs}} - 1\right) \cdot 1000\,‰$$

gdzie:

A_{sn} — skorygowana ze względu na frakcjonowanie izotopowe aktywność próbki,

A_{abs} — bezwzględna aktywność wzorca współczesnej biosfery.

W badaniach stopnia skażenia środowiska radiowęglem niekiedy koncentrację ^{14}C określa się jako aktywność właściwą, wyrażaną w $\frac{Bq}{kg}$ węgla.

Już w początkowym okresie rozwoju chronometrii radiowęglowej Suess (1953) oraz de Vries (1958) odkryli występowanie istotnych zmian koncentracji radiowęgla. Odkrycia te zapoczątkowały systematyczne badania zmian koncentracji izotopu ^{14}C w przyrodzie. Ze względu na przyczyny wyróżnia się dwie podstawowe grupy zmian, a mianowicie zmiany naturalne i zmiany antropogeniczne.

Zmiany antropogeniczne mogą mieć zasięg globalny, obejmując całą przyrodę lub konkretny rezerwuar węgla, bądź charakter lokalny, obejmując część rezerwuarów przyległych bezpośrednio do źródła powodującego zmianę. Zmiany te mogą prowadzić zarówno do podwyższenia, jak też do obniżenia koncentracji ^{14}C w środowisku. Wśród zmian koncentracji izotopu ^{14}C o charakterze antropogenicznym wyróżniamy:

1. Efekt Suessa.
2. Gwałtowny wzrost koncentracji izotopu ^{14}C w wyniku próbnych wybuchów jądrowych i termojądrowych w atmosferze.
3. Produkcję izotopu ^{14}C przez energetyczne reaktory jądrowe oraz przez zakłady przeróbcze paliwa jądrowego.
4. Uwalnianie i produkcję izotopu ^{14}C w wyniku awarii i katastrof urządzeń jądrowych.

2. Efekt próbnych wybuchów jądrowych

Najbardziej znaczącym co do wielkości (obejmującym atmosferę, biosferę i warstwę powierzchniową oceanu) zaburzeniem poziomu koncentracji izotopu ^{14}C w przyrodzie są próbne wybuchy jądrowe w atmosferze. Według danych opublikowanych przez Stockholm International Peace Research Institute (SIPRI, 1977, 1979, 1982) od 1945 r. do chwili obecnej łączna energia próbnych wybuchów nuklearnych w atmosferze wyniosła ponad 500 MTT (megaton trójnitrotoluenu).

Pierwszy wybuch o sile przekraczającej 1 MTT miał miejsce na wiosnę 1954 r., natomiast w 1961 r. łączna moc wybuchów wyniosła 126 MTT, a w 1962 r. 217 MTT, przy czym w tych latach moc kilku pojedynczych prób przeprowadzonych przez ZSRR przekroczyła 50 MTT. Dane dotyczące mocy wybuchów nuklearnych w poszczególnych latach począwszy od 1961r. przedstawia tabela 1. Od stycznia 1963 r. zaczął obowiązywać układ o zakazie prób nuklearnych w atmosferze, w przestrzeni kosmicznej i pod wodą. Do układu tego nie przystąpiły Chiny i Francja, które w późniejszych latach przeprowadzały próbne wybuchy. Energia tych eksplozji była jednak stosunkowo niewielka w porównaniu z próbami przeprowadzonymi przez ZSRR i USA.

Oszacowano, że podczas prób z bronią nuklearną ilość uwalnianych neutronów wynosi $2 \cdot 10^{26}$ neutronów na 1 MTT. Biorąc pod uwagę łączną moc wybuchów, ilość wyprodukowanych neutronów oraz dość duży przekrój czynny reakcji $^{14}N(n,p)^{14}C$ wynoszący 1.7 barna, można wnosić, że tak duży strumień neutronów musiał doprowadzić do znacznej produkcji izotopu ^{14}C. Na podstawie powyższych danych Walton et al (1967) oszacowali, że w wyniku prób z bronią nuklearną do końca 1962 r. wytworzonych zostało $9.2 \cdot 10^{28}$ atomów izotopu węgla ^{14}C, to znaczy 150 kmoli (10.9 kg czystego radioizotopu ^{14}C). Już w końcu lat pięćdziesiątych rozpoczęto systematyczne pomiary koncentracji ^{14}C w atmosferycznym CO_2 (Levin et al, 1980). Najpełniejszą dokumentację zmian koncentracji ^{14}C w atmosferycznym CO_2 przedstawili Nydal i Lovseth (1983). Praca ich zawiera stablicowane wyniki pomiarów koncentracji ^{14}C w próbkach atmosferycznego CO_2 pobieranych na stanowiskach badawczych zlokalizowanych na szerokościach geograficznych od 78°N do 22°S,

Tabela 1

Moc próbnych wybuchów nuklearnych w atmosferze

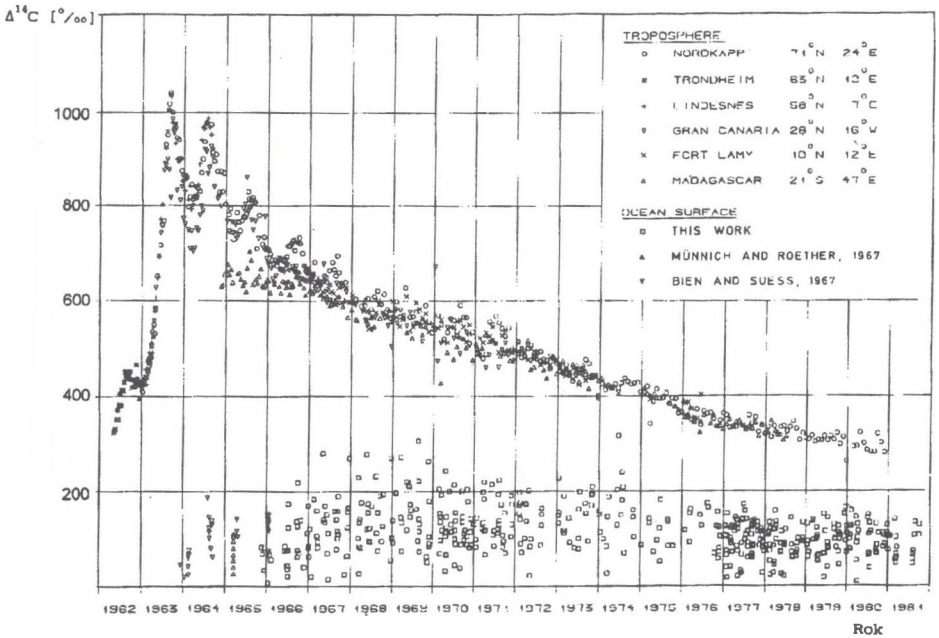
Rok	Moc wybuchów [MTT]	Rok	Moc wybuchów [MTT]
do 1961	100,0	1970	4,5
1961	126,0	1971	4,5
1962	217,0	1972	0,0
1963–1965	0,0	1973	2,0
1966	1,0	1974	0,5
1967	0,0	1975	0,0
1968	3,0	1976	4,0
1969	8,0	Razem	470,5

w tym w kilku miejscach na obszarze północnej Europy (Spitsbergen, Nordkapp, Trondheim) w okresie od 1962 r. do 1981 r. Okres i miejsca pobierania próbek, ich położenie geograficzne oraz wysokość ponad poziom morza, na jakiej były pobierane, przedstawia tabela 2. Wyniki pomiarów przedstawia wykres na rys. 1.

Tabela 2

Miejsce i okres pobierania próbek atmosferycznego CO_2 przez Nydala i Losvetha (1983).

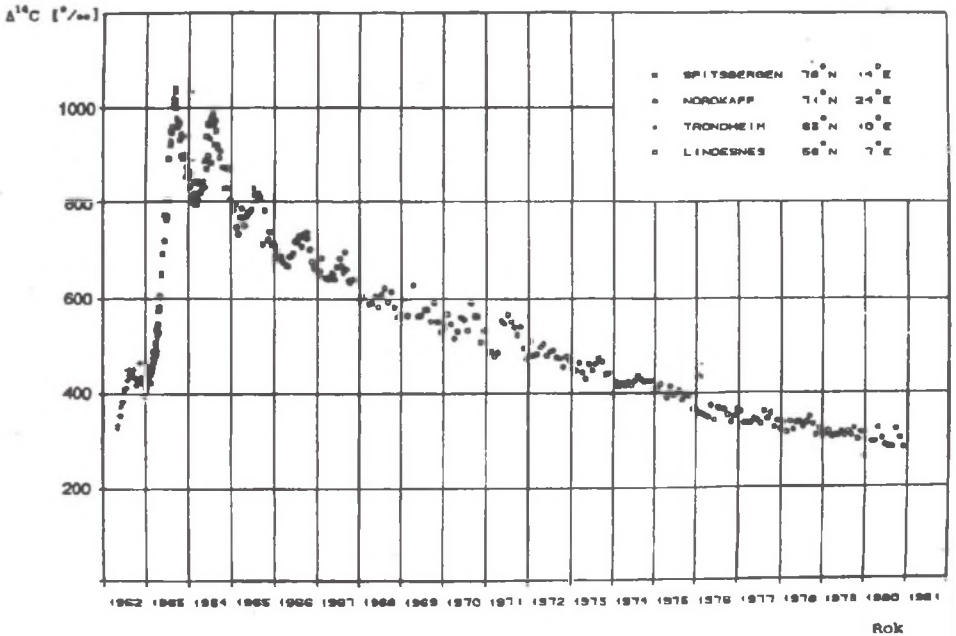
Miejscowość	Położenie geograficzne	Wysokość n.p.m. [m]	Okres pobierania próbek
Spitsbergen	78°04'N, 13°38'E	+10	1963.06–1964.07
Nordkapp	71°06'N, 23°59'E	+70	1962.12–1980.11
Trondheim	63°25'N, 10°15'E	+450	1962.11–1963.08
Lindesnes	57°59'N, 07°04'E	+50	1963.11–1964.09
Santiago de Compostella	42°53'N, 08°26'E	+360	1963.03–1966.12
Teneryfa	28°22'N, 16°30'W	+2400	1963.03–1967.03 1980.01–1981.03
Mas Palomas	27°45'N, 15°40'W	+10	1963.04–1973.02
Fort Lamy	12°08'N, 14°57'E	+300	1966.10–1976.05
Madagaskar	21°27'S, 47°05'E	+1100	1964.11–1980.06



Rys. 1. Zmiany koncentracji ^{14}C w atmosferycznym CO_2 i w powierzchniowej warstwie oceanu (wg Nydal, Lovseth, 1983)

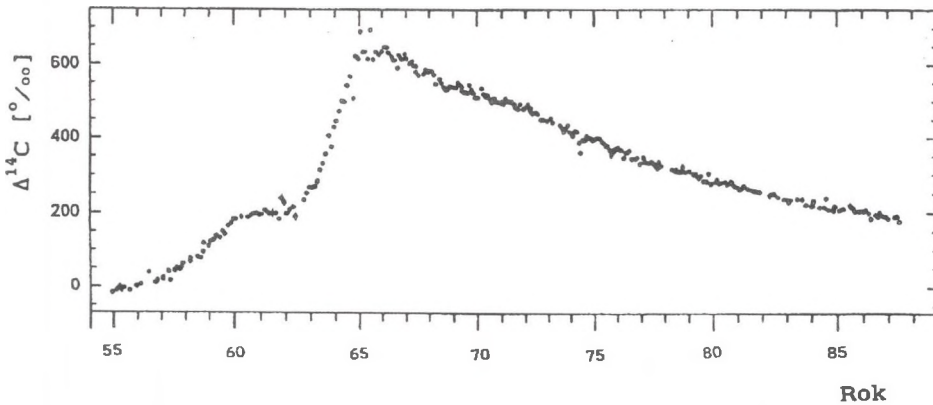
Fig. 1. Changes of ^{14}C concentration in atmospheric CO_2 and surface layer of ocean (acc. to Nydal, Lovseth, 1983)

Wyniki podobnych pomiarów opublikowali Manning et al (1990) dla próbek pobieranych na obszarze półkuli południowej od szerokości geograficznej 1.5°N do 78°S oraz Levin et al (1980) dla próbek pobieranych na terenie zachodniej Europy. Aby zilustrować przebieg zmian koncentracji ^{14}C w atmosferycznym CO_2 na półkuli północnej i południowej, na rys. 2 przedstawiono wyniki pomiarów wykonanych przez Nydala i Lovsetha (1983) dla próbek pobieranych na przylądku Nordkapp w Norwegii (szerokość geograficzna 72°N) oraz na rys. 3 wyniki pomiarów wykonanych przez Manninga et al (1990) dla próbek pobieranych w Wellington w Nowej Zelandii (szerokość geograficzna 41°S).



Rys. 2. Zmiany koncentracji ^{14}C w atmosferycznym CO_2 z terenu północnej Norwegii (Nydal, Lovseth, 1983)

Fig. 2. Changes of ^{14}C concentration in atmospheric CO_2 from northern Norway (acc. to Nydal, Lovseth, 1983)



Rys. 3. Zmiany koncentracji ^{14}C w atmosferycznym CO_2 z terenu Nowej Zelandii (Manning et al, 1990)

Fig. 3. Changes of ^{14}C concentration in atmospheric CO_2 from New Zealand (acc. to Manning et al, 1990)

Dane te wskazują, że zmiany koncentracji ^{14}C w atmosferycznym CO_2 na półkuli północnej następowały skokowo. Pierwsza skokowa zmiana wystąpiła w 1959 r., gdy wielkość $\Delta^{14}C$ osiągnęła wartość 300‰, druga w 1962 r., gdy wzrosła ona do 400‰, by w 1963 r. osiągnąć maksymalną wartość ponad 1000‰. W 1963 r. koncentracja ^{14}C była ponad dwukrotnie wyższa niż w okresie poprzedzającym próby z bronią nuklearną.

Drugą charakterystyczną cechą tych zmian jest fakt, że podczas gdy na półkuli północnej maksimum koncentracji ^{14}C w atmosferycznym CO_2 w 1963 r. wynosiło ponad 1000‰, to odpowiednie maksimum na półkuli południowej zanotowano w 1965 r. i wynosiło ono tylko 700‰. Różnica koncentracji ^{14}C w atmosferycznym CO_2 na półkulach północnej i południowej utrzymywała się do początku lat siedemdziesiątych. W związku z tym, że prawie wszystkie próbne wybuchy były przeprowadzone na półkuli północnej (zdecydowana większość na dwóch poligonach — na pustyni Newada — USA i na Nowej Ziemi — ZSRR), obserwowane różnice koncentracji radiowęgla w atmosferycznym dwutlenku węgla na półkulach południowej i północnej świadczą o utrudnionej wymianie mas powietrza między półkulami. Efekt próbnych wybuchów nuklearnych znalazł swoje odbicie również w koncentracji ^{14}C w powierzchniowej warstwie oceanu. Przedstawia to dolna część wykresu na rys. 1. Reasumując, możemy powiedzieć, że po tak silnym zaburzeniu upłynie jeszcze bardzo długi czas, zanim ustali się nowy stan równowagi koncentracji ^{14}C w przyrodzie. Śledzenie procesu ustalania się równowagi dostarcza cennych informacji o obiegu węgla w przyrodzie, o stopniu i długotrwałości skażenia atmosfery, a co za tym idzie, o zagrożeniu dla środowiska naturalnego człowieka.

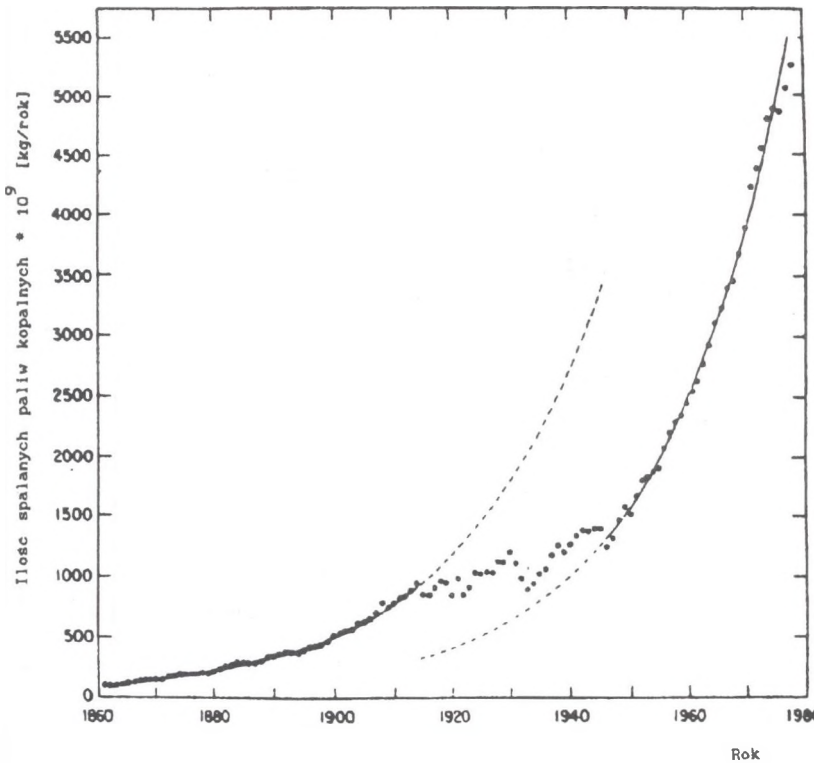
3. Efekt Suessa

Efekt Suessa polega na rozcieńczeniu zawartości $^{14}CO_2$ w atmosferze w rezultacie emisji znacznych ilości nieaktywnego CO_2 pochodzącego ze spalania paliw kopalnych (węgla kamiennego, brunatnego, ropy naftowej i gazu ziemnego). W ostatnim stuleciu nastąpił szybki rozwój przemysłu, pociągając za sobą duże zapotrzebowanie na energię. W związku z tym stale rosła ilość spalanych paliw kopalnych. Keeling (1973) na podstawie danych o wydobyciu paliw kopalnych, opublikowanych przez agendy ONZ, oszacował ilość ich spalania w poszczególnych latach ostatniego stulecia. Dane te przedstawione są na rys. 4. Wykonywał on również systematycznie co dwa miesiące pomiary zawartości CO_2 w powietrzu w Obserwatorium Mauna Loa na Hawajach (Keeling, 1979). Wyniki pomiarów przeprowadzonych w latach 1959–1978 przedstawia rys. 5. Porównując wzrost koncentracji CO_2 w powietrzu ze wzrostem ilości spalanych paliw kopalnych oszacował on koncentrację CO_2 w atmosferze przed 1880 r., tzn. w czasie, gdy wpływ rozwoju przemysłu na poziom koncentracji CO_2 w powietrzu był zaniedbywalny. Oszacowana przez niego wielkość wynosi 290 ppm.

Wpływ spalanych paliw kopalnych na poziom koncentracji ^{14}C w przyrodzie jako pierwszy stwierdził Suess (1953) badając koncentrację ^{14}C w słojach drzew z ostatniego stulecia. Precyzyjne pomiary koncentracji ^{14}C w słojach drzew wykonane przez Stuivera i Quaya, (1981) dokumentują systematyczny jej spadek w przyrodzie. Ich wyniki przedstawione są na rys. 6. Problemem tym zajmowało się jeszcze wielu badaczy. Generalnie możemy powiedzieć, że globalny efekt Suessa, to jest zaniżenie koncentracji ^{14}C w atmosferze od czasów przedindustrialych do 1952 r., kiedy na poziom koncentracji ^{14}C w powietrzu decydujący wpływ mają próby z bronią nuklearną, zawiera się w granicach -20 do $-30\,‰$. Nie ma zgodności w dotychczasowych badaniach co do różnic efektu Suessa dla półkul północnej i południowej.

W badaniach stopnia zanieczyszczenia atmosfery, ruchów mas powietrza i rozchodzenia się zanieczyszczeń duże znaczenie ma wyznaczenie lokalnego zaniżenia koncentracji ^{14}C w powietrzu w otoczeniu wielkich aglomeracji przemysłowo–miejskich (tzw. lokalnego efektu Suessa). Reprezentatywnymi badaniami lokalnego efektu Suessa są prace Levin et al (1980) i Segla et al (1983) przeprowadzone w dolinie Renu w okolicy Heidelbergu. Autorzy zauważyli wyraźne sezonowe zmiany koncentracji ^{14}C w powietrzu, przy czym maksima zaniżenia koncentracji przypadały na miesiące zimowe, natomiast w lecie poziom $\Delta\,^{14}C$ osiągał wartość nie zaburzonej atmosfery. Amplituda obserwowanych zmian $\Delta^{14}C$ osiągała wartość $100\,‰$. Zmiany te spowodowane są głównie spalaniem w zimie znacznych ilości paliw kopalnych przez zamieszkałą ludność.

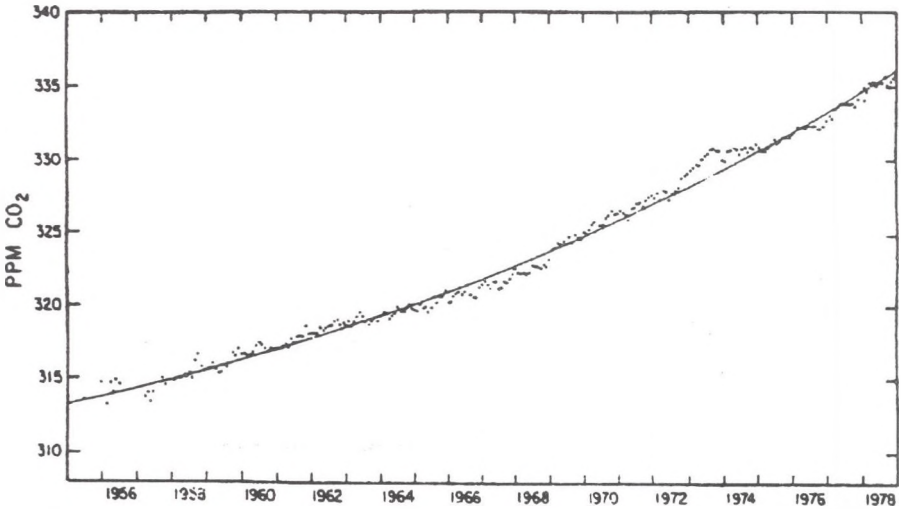
Awsiuk i Pazdur (1986) przeprowadzili badania lokalnego efektu Suessa na terenie Górnego Śląska. Obszar badań cechuje znaczna gęstość zaludnienia wynosząca na terenie



Rys. 4. Ilości spalanych rocznie paliw kopalnych w latach od 1860 do 1980 roku (wg oszacowań Keelinga, 1973)

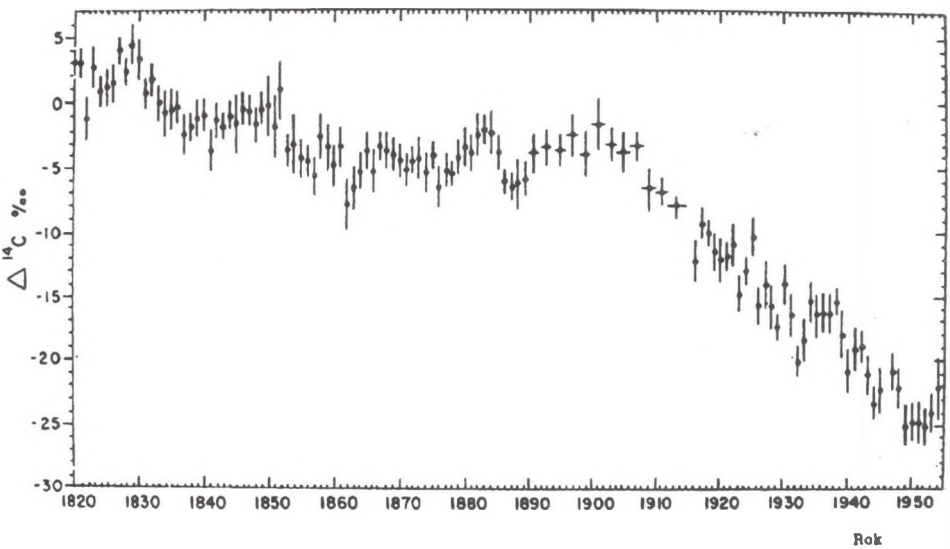
Fig. 4. Annual consumption of fossil fuel since 1860 to 1980 (acc to estimates by Keeling, 1973)

aglomeracji górnośląskiej około 1300 mieszkańców na km^2, zaś na terenie aglomeracji rybnickiej około 950 mieszkańców na km^2 oraz największa w Polsce i jedna z największych w świecie koncentracja przemysłu. Wydobywa się tu 98 % krajowej produkcji węgla kamiennego, produkuje się 66 % koksu, 56 % stali, ponad 50 % głównych wyrobów hutniczych oraz 31 % energii elektrycznej. Na podstawie danych statystycznych oszacowano, że na każdy km^2 spala się tutaj około 12.5 tys. ton węgla. W celu udokumentowania lokalnego efektu Suessa systematycznie w latach 1980–1984 prowadzono pomiary koncentracji ^{14}C w próbkach atmosferycznego CO_2 pobieranych w Gliwicach i innych miastach Górnego Śląska. Wyniki tych pomiarów przedstawia rysunek 7. Na rysunku tym linią ciągłą zaznaczono poziom $\Delta^{14}C$ niezaburzonej atmosfery. Wyznaczony on został na podstawie pomiarów koncentracji ^{14}C wykonanych przez Nydala i Losvetha (1983) próbek atmosfe-



Rys. 5. Wzrost koncentracji CO2 w atmosferze w latach 1956–1978

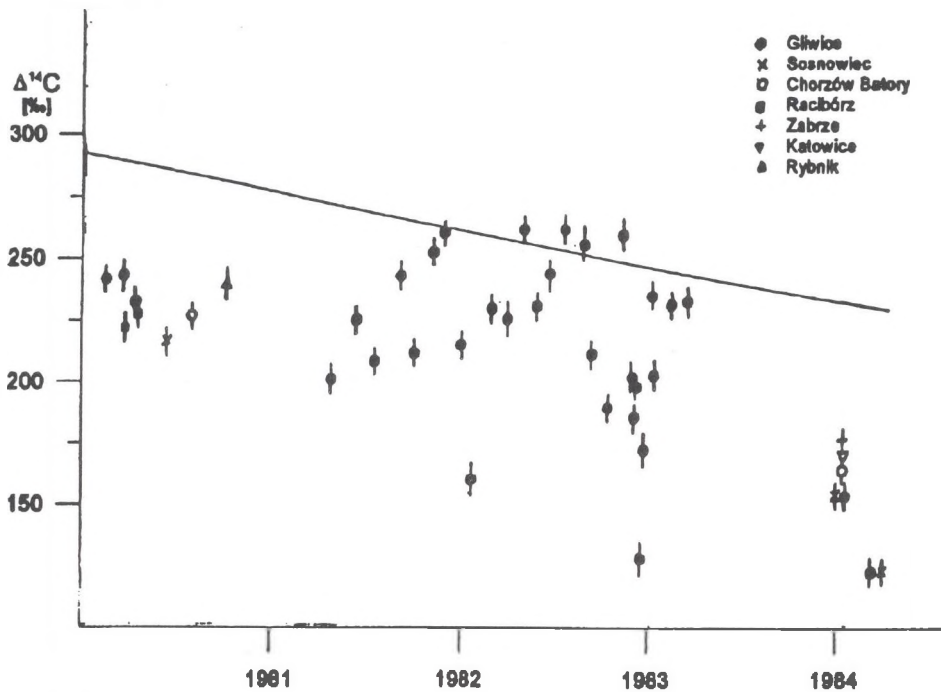
Fig. 5. Increase of CO_2 concentration in atmosphere between 1956 and 1978



Rys. 6. Spadek koncentracji ^{14}C w słojach drzew spowodowany efektem Suessa zaobserwowany przez Stuivera i Quaya (1981)

Fig. 6. Decrease of ^{14}C concentration caused by the Suess effect according to measurements in tree rings made by Stuiver and Quay (1981)

rycznego CO_2 pobranych na przylądku Nordkapp. Widoczne są w wyżej wymienionych pomiarach również sezonowe zmiany koncentracji ^{14}C. Znaczący jej wzrost — nawet do poziomu czystego powietrza — obserwowano w miesiącach letnich, charakter tych zmian nie jest tak wyraźny jak w przypadku pomiarów próbek z doliny Renu. Są tego dwa powody. Pierwszy to położenie — aglomeracje górnośląska i rybnicka leżą na wyżynie, dlatego też duży wpływ na poziom koncentracji ^{14}C mają czynniki meteorologiczne (prędkość i częstość występowania wiatru), powodujące szybką i pełną wymianę powietrza, podczas gdy przewietrzanie doliny Renu jest utrudnione. Drugim powodem jest to, że na Górnym Śląsku emisja CO_2 pochodzi z dwóch źródeł. Pierwsze źródło, którego emisja w niewielkim stopniu podlega zmianom sezonowym, to energetyka i przemysł, zwłaszcza ciężki. Drugie zaś, charakteryzujące się silną zmiennością sezonową, to spalanie paliw kopalnych na potrzeby energetyczne ludności. Natomiast zmienność koncentracji ^{14}C w próbkach pobieranych w dolinie Renu tłumaczona jest przez autorów tylko spożyciem paliw kopalnych przez ludność, gdyż energetyka na tym terenie oparta jest na energii jądrowej.



Rys. 7. Zmiany koncentracji ^{14}C w atmosferycznym CO_2 na terenie Górnego Śląska w latach 1980–1984

Fig. 7. Changes of ^{14}C concentration in atmospheric CO_2 in the Upper Silesia observed in 1980–1984

W celu udokumentowania zależności przestrzennych lokalnego efektu Suessa wykonano pomiary koncentracji ^{14}C w próbkach atmosferycznego CO_2 pobranych na terenie różnych miast Górnego Śląska w tym samym czasie. Do celów porównawczych wprowadzono parametr ^{14}S, charakteryzujący wielkość lokalnego efektu Suessa, zdefiniowany wzorem

$$^{14}S = \frac{\Delta^{14}C - \Delta^{14}C_0}{\Delta^{14}C_0 + 1000} \cdot 100\%$$

gdzie:

$\Delta^{14}C$ — koncentracja ^{14}C w badanej próbce,

$\Delta^{14}C$ — koncentracja ^{14}C w nieskażonej atmosferze.

Wartości parametru ^{14}S przedstawia tabela 3. Średnia wartość wyznaczona z jednoczesnych pomiarów koncentracji ^{14}C na terenie wybranych miast Górnego Śląska wynosi $< {}^{14}S >= -5.54 \pm 0.40\%$. Przyjąć więc można, że zaniżenie koncentracji ^{14}C w atmosferycznym CO_2 występuje w jednolitym stopniu na terenie całego Górnego Śląska. Dwie serie pomiarów koncentracji ^{14}C w próbkach atmosferycznego CO_2 pobieranych jednocześnie w różnych odległościach od centrum Śląska w kierunku wschodnim pozwoliły na oszacowanie zasięgu terytorialnego lokalnego efektu Suessa około 50 km.

Tabela 3

Wartości lokalnego efektu Suessa na terenie miast Górnego Śląska

Reakcja	Przekrój czynny na produkcję ^{14}C w poszczególnych typach reaktorów			
	BWR	PWR	HTGR	LMFBR
$^{13}C(n,\gamma)^{14}C$	1.00 mb	1.00 mb	0.419 mb	0.5 μb
$^{14}N(n,p)^{14}C$	1.48 b	1.48 b	1.02 mb	12.6 mb
$^{15}N(n,d)^{14}C$	0	0	0	1.0 mb
$^{16}O(n,^{3}He)^{14}C$	0	0	0	0.05 μb
$^{17}O(n,^{4}He)^{14}C$	0.183 b	0.183 b	0.110 b	0.12 mb

4. Efekt elektrowni jądrowych

Podczas pracy reaktory jądrowe wytwarzają duże strumienie neutronów, które są spowalniane w moderatorach. Neutrony termiczne i neutrony prędkie w reakcjach z jądrami

azotu, tlenu i węgla, które wymieniono na początku niniejszej pracy, produkują izotop węgla ^{14}C. Radiowęgiel produkowany jest zarówno w paliwie jądrowym, jak też w materiałach struktury rdzenia reaktora. Dlatego też produkcja izotopu ^{14}C zależy od mocy, typu i konstrukcji reaktora.

W zależności od energii neutronów wyróżnia się reaktory na neutrony szybkie (powielające) i na neutrony termiczne. Energia neutronów ma decydujące znaczenie w produkcji radiowęgla, ponieważ w reakcjach $^{13}C(n,g)^{14}C$, $^{14}N(n,p)^{14}C$ i $^{17}O(n,{}^{4}He)^{14}C$ przekrój czynny silnie maleje z energią neutronów, natomiast reakcje $^{15}N(n,d)^{14}C$ i $^{16}O(n,{}^{3}He)^{14}C$ są endotermiczne i przekrój czynny na te reakcje dla neutronów termicznych równa się zero.

Ze względu na sposób chłodzenia reaktory dzielimy na:

1. Reaktory niskotemperaturowe chłodzone lekką wodą;
   (a) wrzące – typu kocioł wodny (BWR),
   (b) ciśnieniowe (PWR).
2. Reaktory wysokotemperaturowe chłodzone gazem (HTGR).
3. Reaktory chłodzone ciekłymi metalami (LMR).

W tabeli 4 podanej przez Wallace'a Jr. (1979) zebrano wartości przekrojów czynnych na poszczególne reakcje w różnych reaktorach.

Tabela 4

Przekrój czynny na produkcję ^{14}C w różnych reakcjach jądrowych

Miejscowość	Data poboru próbki	$\Delta^{14}C$ [‰]	^{14}S [%]
Gliwice	84.01.06/13	150,9	-6,35 ± 0,69
Zabrze	84.01.06/15	176,0	-4,31 ± 0,64
Chorzów Batory	84.01.06/13	160,7	-5,56 ± 0,59
Katowice	84.01.06/13	156,8	-5,06 ± 0,67
Sosnowiec	84.01.06/13	149,9	-6,42 ± 0,63

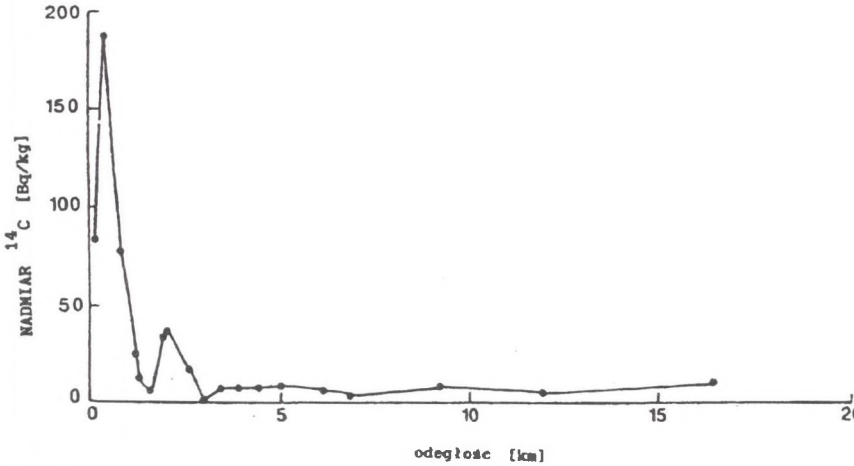
Trzy z nich to reaktory na neutrony termiczne (BWR, PWR i HTGR) oraz reaktor na neutrony prędkie chłodzony ciekłym metalem (LMFBR). Pierwsze prace mające potwierdzić wpływ pracy reaktorów jądrowych na poziom koncentracji ^{14}C w powietrzu w bezpośrednim otoczeniu reaktora przeprowadzono na Uniwersytecie w Heidelbergu (Levin et al, 1980; Segel et al, 1983). Pomiary koncentracji ^{14}C przeprowadzono w próbkach atmosferycznego CO_2 pobranych w okolicy elektrowni jądrowych w Biblis i koło Philippsburga. W elektrowniach tych pracują reaktory różnego typu. W Biblis zainstalowany

jest reaktor typu PWR, natomiast pod Philippsburgiem reaktor typu BWR. Zauważono, że koncentracja ^{14}C w próbkach atmosferycznego CO_2 pobranych w okolicy Biblis jest niższa od koncentracji ^{14}C w węglowodorach zawartych w tej samej próbce powietrza. Wynika stąd, że reaktory typu PWR emitują do atmosfery ^{14}C w postaci węglowodorów. Natomiast w okolicy Philippsburga zanotowano wzrost koncentracji ^{14}C w atmosferycznym CO_2 podczas pracy i wkrótce po drobnej awarii reaktora. Wzrost koncentracji ^{14}C w próbkach liści drzew zebranych w okolicy elektrowni jądrowej w czasie pracy tego reaktora wynosi około 35 ‰ ponad poziom koncentracji ^{14}C w próbkach atmosferycznego CO_2 pobranych w okolicach pozbawionych wpływu reaktora. Stąd wniosek, że reaktory typu BWR emitują do atmosfery ^{14}C w postaci CO_2.

Najdokładniejsze badania zmian koncentracji ^{14}C w okolicy różnych instalacji jądrowych przeprowadzili badacze brytyjscy (McCartney et al, 1986; 1988a,b; Otlet et al, 1983; 1986, 1990; Walker et al, 1986). W pracach wykonanych przez grupę ze Scottish Universities Research and Reactor Center w East Kilbride do szczegółowych badań wybrane zostały następujące obiekty nuklearne: zakłady przeróbcze paliwa jądrowego British Nuclear Fuels w Sellafield, elektrownia jądrowa w Hunterston posiadająca cztery wysokotemperaturowe reaktory chłodzone gazem o całkowitej mocy 1340 MW(e), prototypowy reaktor powielający o mocy 242 MW(e) w Dounreay i reaktor badawczy małej mocy 300 kW(e) znajdujący się w instytucie w East Kilbride. Koncentrację ^{14}C w atmosferze wyznaczano mierząc aktywność ^{14}C w próbkach roślinnych. Najczęściej była to trawa. Próbki pobierano co 200 do 300 m do odległości 20 km od komina zakładu. Kierunek poboru próbek był zgodny z dominującym kierunkiem wiatru.

Wyżej wymienieni autorzy nie zaobserwowali żadnych zmian w koncentracji ^{14}C w okolicy reaktora powielającego w Dounreay oraz w okolicy reaktora badawczego w East Kilbride. Brak zmian tłumaczą tym, że w przypadku reaktora powielającego przekrój czynny na produkcję ^{14}C przez neutrony szybkie jest bardzo mały, natomiast moc reaktora badawczego w East Kilbride jest stanowczo za mała, aby wywołać zauważalne zmiany koncentracji ^{14}C, w powietrzu. Pomiary w próbkach pobranych w okolicy elektrowni w Hunterston wykazują znaczące zawyżenie poziomu koncentracji ^{14}C w bezpośrednim otoczeniu reaktora. Wyniki tych pomiarów przedstawia rys. 8. Autorzy podają, że maksimum koncentracji ^{14}C występuje w odległości około 400 m od komina elektrowni, zaś zasięg zaburzeń koncentracji ^{14}C wynosi kikanaście kilometrów. Maksimum zawyżenia koncentracji ponad normalny poziom wynosi $187\frac{Bq}{kg}$ węgla, odpowiada to wartości $\Delta^{14}C$ zbliżonej do 1000 ‰ (aktywność bezwzględna nieskażonej współczesnej biosfery wynosi $210\frac{Bq}{kg}$ węgla). Widzimy więc, że maksymalna wielkość efektu jest porównywalna z efektem prób z bronią jądrową. Posługując się pióropuszowym dyspersyjnym modelem rozchodzenia się zanieczyszczeń gazowych autorzy oszacowali moc źródła emisji ^{14}C, jaką jest elektrownia w Hunterston na $1\frac{TBq}{rok}$.

McCartney et al (1988), Otlet et al (1983, 1990) oraz Walker et al (1986) przeprowadzili

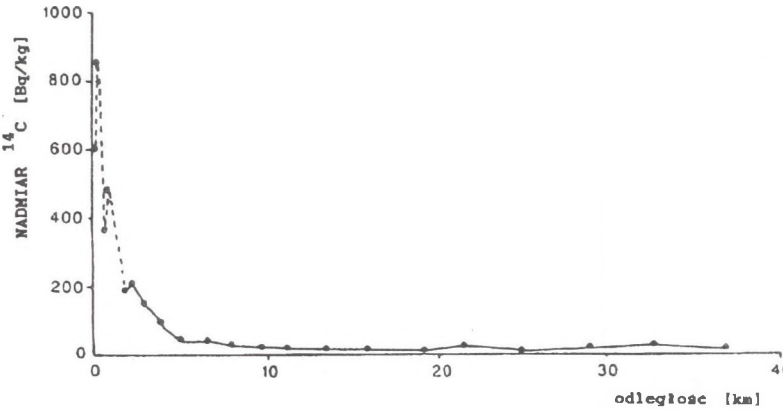


Rys. 8. Obserwowane zawyżenie koncentracji ^{14}C w otoczeniu elektrowni w Hunterston

Fig. 8. Observed increase of ^{14}C around nuclear power plant in Hunterston

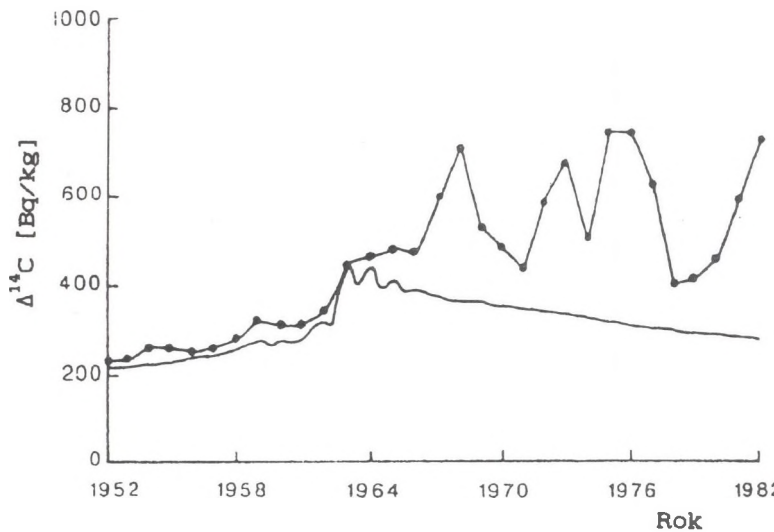
szczegółowe badania wokół zakładów przeróbczych paliwa jądrowego BNF w Sellafield. Wykonali oni pomiary koncentracji ^{14}C w próbkach roślinnych pobieranych w różnych odległościach od komina co kilkaset metrów do kilkunastu kilometrów w latach 1982–1984 i do odległości 50 km w 1985 r. Wyniki pomiarów pomiarów koncentracji ^{14}C próbek pobranych w 1985 r. przedstawia rys. 9. Wyniki te pokazują znaczne zawyżenie koncentracji ^{14}C w najbliższej okolicy komina zakładów. Maksimum koncentracji występuje w odległości 340 m od komina i wynosi $848\frac{Bq}{kg}$ węgla ponad normalny poziom, co daje dotychczas nie spotykaną wartość $\Delta^{14}C = 4000\,‰$. Zasięg terytorialny zawyżenia koncentracji ^{14}C wynosi kilkanaście kilometrów. Podobny zasięg terytorialny efektu zaobserwowano w latach 1982 – 1984, przy czym maksimum efektu stwierdzono w odległości 400 m w 1984 r. Największe wartości zawyżenia koncentracji ^{14}C ponad normalny poziom wynosiły odpowiednio $800\frac{Bq}{kg}$ w 1982 r., $730\frac{Bq}{kg}$ w 1983 r. i 667 Bq kg^{-1} w 1984 r. W przypadku zmian koncentracji ^{14}C w otoczeniu zakładów BNF opis wykorzystujący model pióropuszowo dyspersyjny rozchodzenia się zanieczyszczeń gazowych nie dał zadawalających rezultatów. Do opisu charateru tych zmian McCartney et al (1988a) zastosowali prosty „hiperboliczny" model.

W celu udokumentowania zależności czasowych zmian autorzy wykonali pomiary koncentracji ^{14}C w rocznych słojach drzewa rosnącego w odległości 1.3 km na północny wschód od komina zakładów. Wyniki tych pomiarów przedstawia rys. 10. Wykorzystując te dane oraz stosując prosty model „hiperboliczny" autorzy oszacowali emisję izotopu ^{14}C w poszczególnych latach przez zakłady BNF. Wyniki tego oszacowania zebrane są w tabeli 4. Do 1985 roku całkowita emisja izotopu ^{14}C z tych zakładów wyniosła 187,2 TBq.



Rys. 9. Zawyżenie koncentracji ^{14}C ponad normalny poziom w otoczeniu zakładów BNF w Sellafield

Fig. 9. Observed increase of ^{14}C around nuclear fuel reprocressing plant in Sellafield



Rys. 10. Czasowe zmiany koncentracji ^{14}C w słojach drzewa w odległości 1,3 km od komina zakładów BNF w Sellafield

Fig. 10. Observed temporal changes of ^{14}C observed in tree rings ca. 1.3 km from Sellafield reprocressing plant.

Tabela 5

Wielkość emisji izotopu ^{14}C do atmosfery przez zakłady BNF w Sellafield (McCartney et al, 1988)

Rok	Emisja ^{14}C [TBq]	Rok	Emisja ^{14}C [TBq]	Rok	Emisja ^{14}C [TBq]
1952	0.2	1964	1	1976	14
1953	0.5	1965	2	1977	10
1954	1.0	1966	2	1978	3
1955	1.0	1967	7	1979	4
1956	0.5	1968	11	1980	5
1957	0.5	1969	5	1981	9
1958	0.5	1970	4	1982	13
1959	1.0	1971	3	1983	20
1960	1.0	1972	8	1984	20
1961	1.0	1973	11	1985	7
1962	1.0	1974	6		
1963	0.0	1975	14		

Systematyczne obserwacje emisji radiowęgla i innych radioizotopów przez zakłady jądrowe w Szwajcarii zostały zapoczątkowane w 1977 roku. Podsumowanie dziesięcioletnich badań, przedstawione zostało przez Loosliego i Oeschgera (1989). Badaniami objęto cztery elektrownie jądrowe z reaktorami typu PWR (Beznau, Gösgen) i BWR (Leibstadt, Mühleberg). Wokół wszystkich elektrowni stwierdzono lokalny wzrost koncentracji radiowęgla, wynoszący w przybliżeniu około 10% ponad poziom nieskażonej biosfery. Zdecydowanie wyższy poziom (nadwyżka wynosząca 140% ponad poziom nieskażonej biosfery) stwierdzono w bezpośrednim otoczeniu zakładu badawczego. Badania zasięgu przestrzennego prowadzą do wniosku, że nadmiarowa koncentracja radiowęgla maleje wraz z odległością od miejsca emisji zgodnie z funkcją potęgową o wykładniku -1.4. Obliczenia dawek wynikających z obserwowanych emisji prowadzą do wniosku, że są one pomijalnie małe w porównaniu z pozostałymi składnikami dawki uzyskiwanej w czasie życia człowieka.

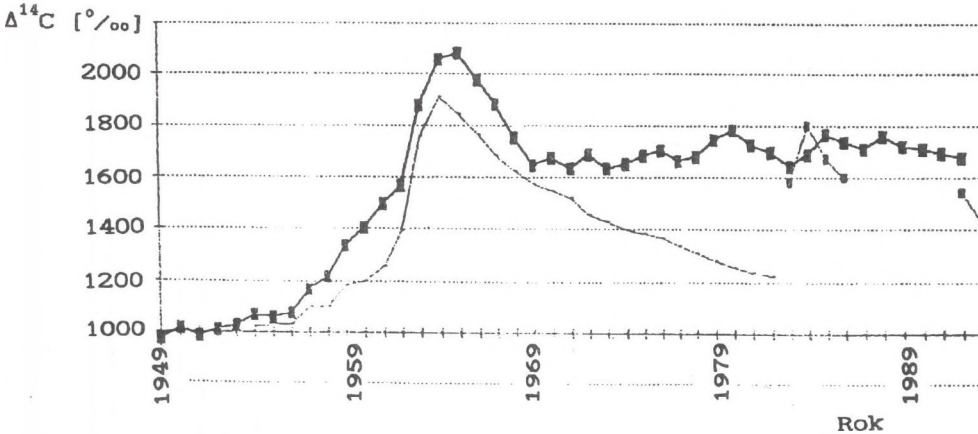
Oprócz omówionych wyżej opracowań wpływu instalacji jądrowych na poziom koncentracji radiowęgla w środowisku, prowadzonych w Europie zachodniej, w latach osiemdziesiątych podjęto także podobne badania w kilku krajach Europy środkowej, objętych gospodarczymi i politycznymi wpływami byłego imperium sowieckiego. Fakt ten wymaga odnotowania zarówno ze względów merytorycznych, jak też metodologicznych. Podstawową okolicznością jest fakt, iż w krajach objętych rozwiązaną już organizacją RWPG

jedynym dostawcą jądrowych reaktorów energetycznych był były Związek Radziecki, a podstawową jednostką działających instalacji energetycznych były reaktory PWR WWER 440 oraz RBMK 1000.

W Czechosłowacji przeprowadzono badania wokół elektrowni jądrowej w Bohunicach (Cimbak et al, 1986; Povinec et al, 1986), obejmujące pomiary koncentracji kilku radioizotopów produkowanych podczas pracy reaktora (tryt, radiowęgiel, krypton-85 i ksenon-133). Stwierdzono nieznaczny wzrost koncentracji radiowęgla w próbkach roślin z otoczenia reaktora, wynoszący od 4 do 6 ‰ ponad poziom w nieskażonej biosferze. Badania przeprowadzone przez Obelica et al (1986) wokół elektrowni jądrowej Krsko w Słowenii o mocy 632 MW(e) wykazały podobny wzrost koncentracji radiowęgla w roślinach z pobranych w odległości 1.5 km od reaktora, wynoszący około 2.2 ‰ ponad poziom w nieskażonej biosferze. Wielkość emisji radiowęgla oszacowana została na 0.1 TBq rocznie. Badania przeprowadzone wokół elektrowni jądrowej w Paks (Węgry), gdzie pracują cztery bloki energetyczne typu PWR (WWER-440) wykazały, że dominująca emisja radiowęgla do atmosfery zachodzi pod postacią metanu. Stwierdzono nieznaczny wzrost koncentracji radiowęgla w otoczeniu elektrowni i oszacowano wielkość rocznej emisji na $740\frac{\mathrm{GBq}}{\mathrm{GW(e)}}$ (Hertelendi et al, 1989).

Ostatnio Kovaliukh et al (1994a) opublikowali wstępne wyniki pomiarów koncentracji ^{14}C wykonanych w okolicy dużych zakładów nuklearnych Tomsk-7. Pracuje tam kilka reaktorów uranowo – grafitowych typu ADE 4,5. W zakładach tych wykonuje się również przetwarzanie paliwa jądrowego. Pomiary wykonano w słojach dwóch drzew rosnących w sąsiedztwie zakładów. Pierwsze z nich ścięto w odległości około 10 km na południowy wschód, drugie w odległości około 15 km na północny zachód od zakładów. W doborze punktów poboru próbek uwzględniono fakt, iż na badanym obszarze wiatry wieją przeważnie z północnego zachodu. Na rys. 11 przedstawiono wyniki pomiarów próbek pobranych w odległości 10 km oraz zaznaczono poziom koncentracji w niezaburzonej atmosferze. Widać wyraźnie, że poziom koncentracji ^{14}C w tym punkcie ustalił się i wynosi około 750 ‰ z niewielkimi fluktuacjami oraz to, że począwszy od 1958 r. znacznie przewyższa jej nie zaburzony poziom. Zawyżenie koncentracji ^{14}C w latach osiemdziesiątych osiąga wartość około 550 ‰. W próbkach pobranych w odległości 15 km poziom koncentracji ^{14}C jest również nieco podwyższony i ulega fluktuacjom, przy czym wielkość zawyżenia nie przekracza 100 ‰. Niewielka na razie ilość danych doświadczalnych nie pozwoliła na oszacowanie wielkości emisji izotopu ^{14}C do atmosfery przez te zakłady.

Wyniki powyższych prac pokazują, że obecnie największym źródłem emisji izotopu ^{14}C do atmosfery są instalacje jądrowe. McCartney et al (1988a) szacują, że średnia produkcja izotopu ^{14}C w reaktorach jądrowych wynosi $3.40\frac{\mathrm{TBq}}{\mathrm{GW(e)\ rok}}$, przy czym do atmosfery uwalnia się $0.94\frac{\mathrm{TBq}}{\mathrm{GW(e)\ rok}}$. Opierając się na danych Komisji Ekonomicznej Narodów Zjednoczonych Otlet et al (1992) szacują, że całkowita emisja izotopu ^{14}C systematycznie wzrasta począwszy od wartości 180 TBq w 1980 r., osiągając 360 TBq w 1985 r. i 580 TBq w 1990 r.



Rys. 11. Zmiany koncentracji ^{14}C w słojach drzewa w odległości 10 km od zakładów jądrowych Tomsk-7

Fig. 11. Observed changes of ^{14}C concentration in tree rings ca 10 km from nuclear facilities Tomsk-7

Na podstawie przewidywanego rozwoju energetyki jądrowej Otlet et al (1992) oceniają wzrost emisji w roku 2000 do poziomu 1000 TBq.

Podsumowując, możemy stwierdzić, że elektrownie jądrowe są źródłem znacznej emisji izotopu ^{14}C oraz wywołują lokalne zaburzenie jego poziomu koncentracji, przy czym największy efekt występuje w otoczeniu reaktorów wysokotemperaturowych typu HTGR, znacznie nmiejszy dla reaktorów niskotemperaturowych typu BWR, a zaniedbywalnie mały w przypadku reaktorów niskotemperaturowych typu PWR i reaktorów na neutrony prędkie.

5. Efekt awarii w Czernobylu

Podczas normalnej pracy w paliwie i w materiałach konstrukcyjnych rdzenia reaktora produkuje się izotop ^{14}C, którego tylko niewielka część uwalnia się do atmosfery. W wyniku awarii w elektrowni w Czernobylu stopieniu uległ rdzeń reaktora. Awaria miała dwa etapy. W pierwszym w trakcie i bezpośrednio po stopieniu się rdzenia wygenerował się duży strumień neutronów, które oddziałując z jądrami azotu zawartymi w powietrzu wyprodukowały duże ilości izotopu ^{14}C. Jednocześnie uwolniony został do atmosfery izotop ^{14}C wyprodukowany podczas normalnej pracy w paliwie i w materiałach konstrukcyjnych rdzenia. Ponieważ w rdzeniu w obecności tlenu panowała wysoka temperatura, nagroma-

dzony izotop ^{14}C uwolniony został do atmosfery w postaci $^{14}CO_2$. W drugim etapie awarii wystąpił praktycznie niemożliwy do ugaszenia pożar grafitu będącego moderatorem reaktora. Grafit ten był w znacznym stopniu wzbogacony w izotop ^{14}C wyprodukowany w reakcji $^{13}C(n,g)^{14}C$ podczas poprzedniej normalnej pracy reaktora. Podczas kilku dni trwania tego procesu emitowany był do atmosfery CO_2 silnie wzbogacony w izotop ^{14}C.

Bezpośrednie pomiary wzrostu koncentracji radiowęgla w atmosferze, spowodowane awarią w Czernobylu, podjęte zostały w Finlandii przez Salonen (1987), w Krakowie przez Kuca (1987) i w Szwecji przez Olsson (1989). Salonen (1987) stwierdziła znaczny wzrost radioaktywności izotopów ^{14}C i trytu w czasie kilku dni po awarii, pomiary wykonane na próbkach pobieranych w Krakowie wykazały nieznaczny wzrost radioaktywności atmosferycznego CO_2. Wyniki tych pomiarów doprowadziły do opublikowania pierwszych ocen wielkości emisji radiowęgla podczas awarii w Czernobylu (Florkowski et al, 1988).

Kovaliukh et al (1994b) opublikowali wyniki pomiarów koncentracji ^{14}C w słojach drzew rosnących na terenie objętym wpływami katastrofy. Zaobserwowali oni znaczny wzrost koncentracji ^{14}C w utworzonych w 1986 r. słojach drzew rosnących w bezpośrednim otoczeniu reaktora. Maksymalne wartości $\Delta^{14}C$ wynoszą 5285 ‰ dla próbki pobranej w odległości 4 km na północny zachód od reaktora i 4016 ‰ dla próbki pobranej w odległości 2.5 km w kierunku zachodnim.

Literatura

Awsiuk R., Pazdur M. F., 1986, Regional Suess effect in the Upper Silesia urban area. Radiocarbon 28, s. 655–660.

Cain W. F., 1978, Carbon–14, tree–rings and urban pollution. Environ. International 1, s. 167–171.

Cimbak S., Cechova A., Grgula M., Povinec P., Sivo A., 1986, Anthropogenic radionuclides ^{3}H, ^{14}C, ^{85}Kr and ^{133}Xe in the atmosphere around nuclear power reactors. Nucl. Instrum. Meth. B17, s. 560–563.

Florkowski T., 1994, Czy istnieje ograniczenie datowania radiowęglem wynikłe z naturalnej produkcji ^{14}C? Zesz. Nauk. Politechniki Śląskiej Seria Mat.–Fiz., Z. 71, Geochronometria Nr 10, s. 11–23.

Florkowski T., Kuc T., Różański K., 1988, Influence of the Chernobyl accident on the natural levels of tritium and radiocarbon. Applied Radiation Isot. 39, s. 77–79.

Hertelendi E., Uchrin G., Ormai P., 1989, ^{14}C release in various chemical forms with gaseous effluents from the Paks nuclear power plant. Radiocarbon 31, s. 754–761.

Keeling C. D., 1973, Industrial production of carbon dioxide from fossil fuel CO_2 and limestone. Tellus 25, s. 174–198.

Keeling C. D., 1979, The Suess effect: ^{13}C ^{14}C interrelations. Environ. International 2, s. 229–300.

Kovaliukh N. N., Skripkin V. V., Awsiuk R., Pazdur A., Pazdur M. F., Los I. P., Buzinny M. G., Nesvetailo V. D., 1994a, Dendroradioecology of the vicinity of nuclear fuel reprocessing plant Tomsk–7, [w:] Jędrysek M. O., Red., Isotope Workshop II. Extended Abstracts, Int. Isot. Soc., Wrocław, s. 83–84.

Kovaliukh N. N., Skripkin V. V., Sobotovicz E. W., Buzinny M. G., Sanin E. W., 1994b, Zapis emisji radiowęgla w czasie awarii reaktora jądrowego w Czernobylu w słojach rocznych przyrostów drzew. Zesz. Nauk. Politechniki Śląskiej Seria Mat.-Fiz., Z. 71, Geochronometria Nr 10, s. 217–224.

Kuc T., 1987, ^{14}C traced in Krakow after the Chernobyl accident. Radiocarbon 29, s. 319–322.

Levin I., Bosinger R., Bonani G., Francey R. J., Kromer B., Mtnnich K. O., Suter M., Trivett N. B. A., Wölfli W., 1992, Radiocarbon in atmospheric carbon dioxide and methane: Global distribution and trends, [w:] Taylor R. E., Long A., Kra R. S., Red., Radiocarbon After Four Decades. An Interdysciplinary Perspective. Springer, New York, s. 503–518.

Levin I., Kromer B., Barabas M., Münnich K. O., 1988, Environmental distribution and long–term dispersion of reactor CO_2 around two German nuclear power plants. Health Physics 54, s. 149–156.

Levin I., Münnich K. O., Weiss W., 1980, The effect of anthropogenic CO_2 and ^{14}C sources on the distribution of ^{14}C in the atmosphere. Radiocarbon 22, s. 369–391.

Loosli H. H., Oeschger H., 1989, ^{14}C in the environment of Swiss nuclear installations. Radiocarbon 31, s. 747–753.

Manning M. R., Lowe D. C., Melhuish W. H., Sparks R. J., Wallace G., Brenninkmeijer C. A. M., McGill R. C., 1990, The use of radiocarbon measurements in atmospheric studies. Radiocarbon 32, s. 37–58.

McCartney M., Baxter M. S., McKay K., Scott E. M., 1986, Global and local effects of ^{14}C discharges from the nuclear fuel cycle. Radiocarbon 28, s. 634–643.

McCartney M., Baxter M. S., Scott E. M., 1988a, Carbon–14 discharges from nuclear fuel cycle: local effects. Journ. Environ. Radioactivity 8, s. 156–171.

McCartney M., Baxter M. S., Scott E. M., 1988b, Carbon-14 discharges from nuclear fuel cycle: global effects. Journ. Environ. Radioactivity 8, s. 143–155.

Nydal R., Lovseth K., 1983, Tracing bomb C in the atmosphere, 1963-1980. Journ. Geophys. Res. 88, s. 3621–3642.

Obelic B., Krajcar–Bronic I., Srdoc D., Horvatincic N., 1986, Environmental ^{14}C levels around the 632 MWe nuclear power plant Krsko in Yugoslavia. Radiocarbon 28, s. 644–648.

Olsson I. U., 1989, Recent ^{14}C activity in the atmosphere, „clean air", and the Chernobyl effect. Radiocarbon 31, s. 740–746.

Otlet R. L., Fulker M. J., Walker A. J., 1992, Environmental impact of atmospheric carbon–14 emissions resulting from the nuclear energy cycle, [w:] Taylor R. E., Long A., Kra R. S., Red., Radiocarbon After Four Decades. An Interdysciplinary Perspective. Springer, New York, s. 519–534.

Otlet R. L., Walker A. J., Fulker M. J., 1990, Survey of the dispersion of ^{14}C in the vicinity of the UK reprocessing site at Sellafield. Radiocarbon 32, s. 23–30.

Otlet R. L., Walker A. J., Longley H., 1983, The use of ^{14}C in natural materials to establish the average gaseous dispersion patterns of releases from nuclear installations. Radiocarbon 25, s. 593–602.

Povinec P., Chudy M., Sivo A., 1986, Anthropogenic radiocarbon: Past, present and future. Radiocarbon 28, s. 668–682.

Salonen L., 1987, Carbon–14 and tritium in air in Finland after the Chernobyl accident. Radiochim. Acta 41, s. 145–148.

Segl M., Levin I., Schoch–Fischer H., Münnich M. Kromer B. Tschiersch J., Münnich K. O., 1983, Anthropogenic ^{14}C variations. Radiocarbon 25, s. 583–592.

SIPRI, 1977 Yearbook, World Armament and Disarmaments, Almqvist and Wiksell, Stockholm.

SIPRI, 1979 Yearbook, World Armament and Disarmaments, Almqvist and Wiksell, Stockholm.

SIPRI, 1982 Yearbook, World Armament and Disarmaments, Almqvist and Wiksell, Stockholm.

Stuiver M., Polach H. A., 1977, Discussion. Reporting of ^{14}C data. Radiocarbon 19, s. 355–363.

Stuiver M., Quay P. D., 1981, Atmospheric ^{14}C changes resulting from fossil fuel CO_2 release and cosmic ray flux variability. Earth Planet. Sci. Lett. 53, s. 349–362.

Suess H. E., 1953, Natural radiocarbon and the rate of exchange of carbon dioxide between the atmosphere and the sea, [w:] Proc. of the Conf. on Nuclear Processes Geol. Settings, Natl Acad. Sci., Natl Res. Council, Washington, D.C., s. 52–56.

de Vries H., 1958, Variation in concentration of radiocarbon with time and location on earth, Proc. Konikl. Nederl. Akad. Wetensch. B61, s. 94–102.

Walker A. J., Otlet R. L., Longley H., 1986, Applications of the use of Hawthorn berries in monitoring ^{14}C emissions from UK nuclear establishment over an extended period. Radiocarbon 28, s. 681–690.

Wallace D. Jr., 1979, Carbon–14 production in nuclear reactors, [w:] Management of low–level radioactive wastes, t. 1, Pergamon Press, s. 151–191.

Walton A., Baxter M. S., Callow W. J., Baker M. J., 1967, Carbon–14 concentrations in environmental materials and their temporal fluctuations, [w:] Radioactive Dating and Methods of Low–Level Counting, IAEA, Vienna, s. 41–47.

Abstract

There are three processes that cause important changes of radiocarbon concentration in the contemporary environment. The first process, which was discovered by H. E. Suess in the early years of the radiocarbon method, and in therefore called the „Suess effect" or „industrial effect" is associated with systematical increase of fossil fuel combustion. Increasing amount of dead carbon dioxide causes decrease of radiocarbon concentration. The effect occurs on a global scale and may be also observed in local scale in areas with high population density and industrial activity. Nuclear weapon tests have resulted in production of large amounts of artificial radiocarbon in the atmosphere. The maximum increase was noted in 1963 when the radiocarbon concentration in atmospheric carbon dioxide was by more than 1000 permille higher as compared with uncontaminated atmosphere. Local increase of radiocarbon level has been noted around many nuclear installations. Systematical studies of the effect of nuclear installations on local scale have been undertaken in United Kingdom and Germany. These studies include investigation of the amount of radiocarbon emissions from nuclear facilities, their chemical form and temporal changes as well and spacial distribution of resulting contamination. It was estimated that the production of radiocarbon during normal operation of nuclear reactors

is equivalent to $3.40 \frac{\mathrm{TBq}}{\mathrm{GW(e)\ yr}}$ and the radioactivity released to the atmosphere is equal to $0.94 \frac{\mathrm{TBq}}{\mathrm{GW(e)\ yr}}$. Total radiocarbon activity released from nuclear power stations was equal to 180 TBq in 1980, 360 TBq in 1985 and 580 TBq in 1990. Basing on predicted increase of energy production in nuclear power plants Otlet et al (1992) estimate that in 2000 AD the radiocarbon activity release to the atmosphere may exceed 1000 TBq.